

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-217856

(43)Date of publication of application : 31.07.2003

(51)Int.Cl.

H05B 33/14  
C09K 11/06  
H05B 33/22

(21)Application number : 2002-010167

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 18.01.2002

(72)Inventor : OKADA HISASHI

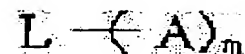
## (54) LIGHT EMITTING ELEMENT

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light emitting element allowing light emission of high brightness and high efficiency at a low voltage, excellent in stability in repeated use, and excellent in color purity.

SOLUTION: This light emitting element formed with a plurality of organic compound layers containing a luminescent layer and an electron transport layer between a pair of electrodes, and containing two kinds or more of electron transport materials contains at least one kind of compound expressed by the general formula (1). (In the formula, A represents a hetero ring group condensed with two or more of aromatic rings, and the hetero rings expressed by the A may be same or different. m represents 2 or more of integer. L represents a coupled group).

一般式 (1)



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

16.03.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-217856

(P2003-217856A)

(43)公開日 平成15年7月31日(2003.7.31)

| (51)Int.Cl. <sup>7</sup> | 識別記号  | F I           | テマコード <sup>*</sup> (参考) |
|--------------------------|-------|---------------|-------------------------|
| H 0 5 B 33/14            |       | H 0 5 B 33/14 | B 3 K 0 0 7             |
| C 0 9 K 11/06            | 6 9 0 | C 0 9 K 11/06 | 6 9 0                   |
| H 0 5 B 33/22            |       | H 0 5 B 33/22 | B                       |

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全 38 頁)

(21)出願番号 特願2002-10167(P2002-10167)

(22)出願日 平成14年1月18日(2002.1.18)

(71)出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72)発明者 岡田 久

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真

フイルム株式会社内

(74)代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 AB11

DB03

(54)【発明の名称】 発光素子

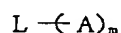
(57)【要約】

【課題】低電圧で高輝度、高効率発光が可能であり、また繰り返し使用時での安定性に優れ、かつ色純度に優れた発光素子を提供する。

【解決手段】一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式(Ⅰ)で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする発光素子。

【化1】

一般式(Ⅰ)



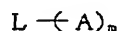
(式中、Aは二つ以上の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。)

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を有し、且つ 2 種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、該電子輸送材料の少なくとも 1 種が下記一般式 (I) で表される化合物であることを特徴とする発光素子。

【化 1】

一般式 (I)



(式中、A は二つ以上の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、A で表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。m は 2 以上の整数を表す。L は連結基を表す。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電気エネルギーを光に変換して発光できる発光素子に関し、表示素子、ディスプレイ、バックライト、電子写真、照明光源、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信デバイス等の分野に好適に使用できる発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 今日、種々の表示素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光 (EL) 素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な表示素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている

(アブライド フィジックス レターズ、51 巻、913 頁、1987 年)。この文献に記載された発光素子はトリス (8-ヒドロキシキノリナト) アルミニウム錯体 (Alq) を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料 (アミン化合物) と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】 上記積層型発光素子の発光効率を更に改良する手段として、蛍光色素をドーピングする方法が知られている。例えば、ジャーナル オブ アブライド フィジックス 65 巻、3610 頁、1989 年に記載のクマリン色素をドーピングした発光素子はドーピングしない素子に比べて発光効率が大幅に向上している。この場合、用いる蛍光性化合物の種類を変えることにより所望の波長の光を取り出すことが可能であるが、電子輸送材料として Alq を用いた場合、高輝度を得るために駆動電圧を高くすると、ドーピングした蛍光性化合物の発光の他に Alq の緑色発光が観測されてくるため、青色を発光させる場合には色純度の低下が問題になり、色純度を低下させないホスト材料の開発が望まれている。これを改良するものとして特開平 10-92578 号、米国特許第 5766779 号に特定のインドール誘導体が開示されているが、記載の化合物では高輝度発光のためには駆動電圧を

高くする必要があるなどの問題があり、低電圧で高輝度発光可能な化合物の開発が望まれていた。また、発光効率を高める方法として 3-(4-ビフェニル)-4-フェニル-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,2,4-トリアゾール (TAZ)、バソクブロイン (BCP) などのホールブロック材料を用いる方法が報告されているが、これら公知の材料では耐久性、特に高温保存経時、連続発光での素子劣化が大きな問題となっていた。また、駆動電圧を下げる技術としては、シロール系化合物や有機カルボン酸アルカリ金属塩を電子注入層として用いる方法や Alq などの電子輸送材料に Li などをドーピングする方法が開示されているが、これらの技術はいずれも耐久性が不十分であり、実用に供し得なかった。

【0004】 一方、有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の面で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の第一の目的は、低電圧で高輝度、高効率発光が可能であり、また繰り返し使用時の安定性に優れた発光素子の提供にある。本発明の第二の目的は、色純度に優れた発光素子の提供にある。

【0006】

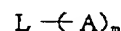
【課題を解決するための手段】 この課題は下記手段によって達成された。

【0007】 (1) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ 2 種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (I) で表される化合物を少なくとも 1 種含有することを特徴とする発光素子。

【0008】

【化 2】

一般式 (I)



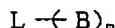
【0009】 (式中、A は二つ以上の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、A で表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。m は 2 以上の整数を表す。L は連結基を表す。)

(2) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ 2 種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (II) で表される化合物を少なくとも 1 種含有することを特徴とする (1) に記載の発光素子。

【0010】

【化3】

一般式 (II)



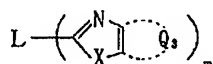
【0011】（式中、Bは二つ以上の5員環および／または6員環の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

（3） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (III) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（2）に記載の発光素子。

【0012】

【化4】

一般式 (III)



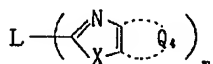
【0013】（式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>3</sub>は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

（4） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (IV) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（3）に記載の発光素子。

【0014】

【化5】

一般式 (IV)



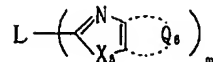
【0015】（式中、XはO、S、Se、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>4</sub>は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

（5） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (V) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（4）に記載の発光素子。

【0016】

【化6】

一般式 (V)



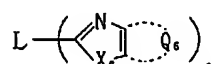
【0017】（式中、X<sub>5</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。mは2以上の整数を表す。Lは連結基を表す。）

10 （6） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (VI) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（5）に記載の発光素子。

【0018】

【化7】

一般式 (VI)



20

【0019】（式中、X<sub>6</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>6</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。）

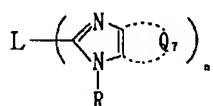
（7） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (VII) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（6）に記載の発光素子。

30

【0020】

【化8】

一般式 (VII)



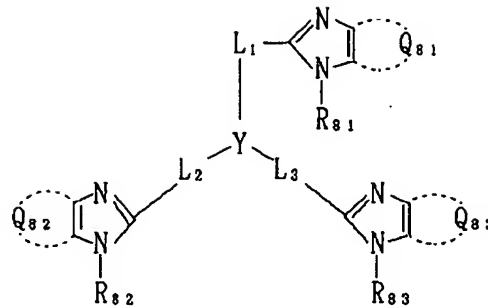
【0021】（式中、Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>7</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。nは2ないし8の整数を表す。Lは連結基を表す。）

（8） 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (VIII) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする（7）に記載の発光素子。

【0022】

50 【化9】

## 一般式 (VIII)



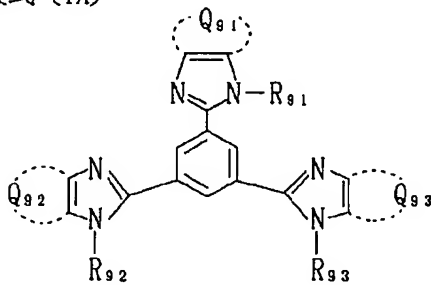
【0023】(式中、 $Q_{81}$ 、 $Q_{82}$ および $Q_{83}$ は、それぞれ6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 $R_{81}$ 、 $R_{82}$ および $R_{83}$ は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、それぞれ連結基を表す。 $Y$ は窒素原子または芳香族環を表す。)

(9) 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (IX) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする(8)に記載の発光素子。

【0024】

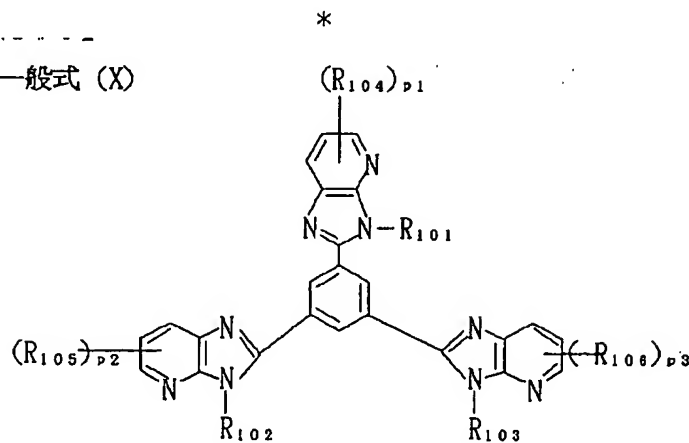
【化10】

## 一般式 (IX)



30

## 一般式 (X)



\*

\*【0025】(式中、 $Q_{91}$ 、 $Q_{92}$ および $Q_{93}$ は、それぞれ6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 $R_{91}$ 、 $R_{92}$ および $R_{93}$ は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)

(10) 一对の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式 (X) で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする(9)に記載の発光素子。

【0026】

【化11】

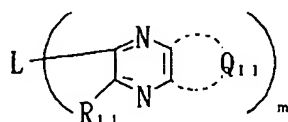
【0027】(式中、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$ および $R_{103}$ は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 $R_{104}$ 、 $R_{105}$ および $R_{106}$ は、それぞれ置換基を表す。 $p_1$ 、 $p_2$ および $p_3$ は、それぞれ0ないし3の整数を表す。)

(11) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式(XI)で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする(2)に記載の発光素子。

【0028】

【化12】

一般式(XI)



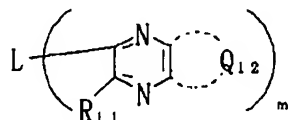
【0029】(式中、 $Q_{11}$ は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。 $R_{11}$ は水素原子または置換基を表す。 $m$ は2以上の整数を表す。 $L$ は連結基を表す。)

(12) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子において、下記一般式(XII)で表される化合物を少なくとも1種含有することを特徴とする(11)に記載の発光素子。

【0030】

【化13】

一般式(XII)



【0031】(式中、 $Q_{12}$ は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 $R_{11}$ は水素原子または置換基を表す。 $m$ は2以上の整数を表す。 $L$ は連結基を表す。)

(13) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、該電子輸送層が2層以上からなることを特徴とする(1)～(12)のいずれかに記載の発光素子。

(14) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、該発光層が燐光発光性化合物を含有することを特徴とする

(1)～(13)のいずれかに記載の発光素子。

(15) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、前記一般式(1)～(XII)で表される化合物の少なくとも1種と他の電子輸送材料を同一層内に含有することを特徴とする(1)～(14)のいずれかに記載の発光素子。

(16) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、該電子輸送層が2層以上からなり、電子輸送層の少なくとも1層に前記一般式(1)～(XII)で表される化合物の少なくとも1種を含有し、且つ他の電子輸送層に他の電子輸送材料を含有することを特徴とする(1)～(15)のいずれかに記載の発光素子。

10 (17) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、前記一般式(1)～(XII)で表される化合物の少なくとも2種を含有することを特徴とする(1)～(16)のいずれかに記載の発光素子。

(18) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有する発光素子において、該電子輸送層の少なくとも1層が前記一般式(1)～(XII)で表される化合物の少なくとも1種をポリマーに分散した層であることを特徴とする(1)～(17)のいずれかに記載の発光素子。

20 (19) 一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を形成し、且つ2種以上の電子輸送材料を含有する発光素子において、青色発光層と陰極との間の少なくとも一層が前記一般式(1)～(XII)で表される化合物を少なくとも1種含有する層であることを特徴とする(1)～(18)のいずれかに記載の発光素子。

(20) 陽極と陰極の少なくとも一対の電極間に発光層と電子輸送層を有する発光素子において、発光層と陰極間に2層以上の層を有し、発光層に接する層に前記一般式(1)～(XII)で表される化合物を少なくとも1種含有し、且つ一般式(1)～(XII)で表される化合物を含有する層と陰極との間に、一般式(1)～(XI)で表される化合物より電子親和力の大きい化合物を含有する層を有することを特徴とする(1)～(19)のいずれかに記載の発光素子。

【0032】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。まず、一般式(1)で表される化合物について説明する。Aは二つ以上の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、Aで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。Aで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環または6員環の芳香族ヘテロ環が縮合したものであり、より好ましくは2ないし6個、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。Aで表されるヘテロ環基を構成する芳香族環の具体例としては、例えばベンゼン、フラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジ

ン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンである。

【0033】Aで表される縮合環の具体例としては、例えばベンゾフラン、ベンゾチオフェン、インドール、インダゾール、イソベンゾフラン、ベンズイミダゾール、ベンゾトリアゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチアゾール、ベンズセレナゾール、ベンズテルラゾール、インドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、トリアゾロピリジン、テトラザインデン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジン、ピラジノピリダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、イミダゾピリミジン、イミダゾピリダジン、オキサゾロピリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロピリミジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロピリジン、チアゾロピラジン、チアゾロピリミジン、チアゾロピリダジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、オキサゾロピリジン、チアゾロピリジン、ピリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンである。

【0034】Aで表されるヘテロ環基は更に他の環と縮合してもよく、また置換基を有してもよい。Aで表されるヘテロ環基の置換基としては、例えばアルキル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメチル、エチル、iso-ブチル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられ

る。）、アリール基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～10であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、1-ナフチルオキシ、2-ナフチルオキシなどが挙げられる。）、ヘテロ環オキシ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルオキシ、ピラジロキシ、ピリミジルオキシ、キノリルオキシなどが挙げられる。）、シリルオキシ基（好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数6～30であり、例えばトリフェニルシリルオキシ、t-ブチルジメチルシリルオキシ、トリイソプロピルシリルオキシなどが挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒバロイルなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。）、アルコキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、アリールオキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノなどが挙げられる。）、スルホニルアミノ基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭

素数1~12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~20、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばビリジルチオ、2-ベンズオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシル基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ビリジル、キノリル、フリ

ル、チエニル、ビペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼビニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0035】Aで表されるヘテロ環基の置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。mは2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは2ないし6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好ましくは2または3であり、最も好ましくは3である。Lは連結基を表す。Lで表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Si、Geなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環(好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。)およびNとこれらの組合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組合わせから成る基である。

【0036】Lで表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられる。

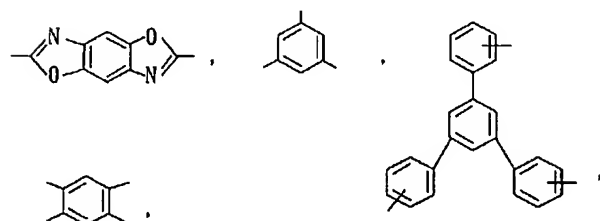
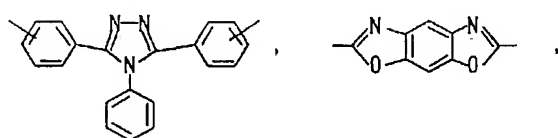
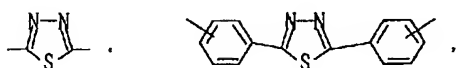
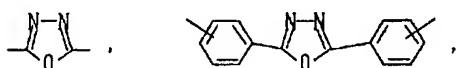
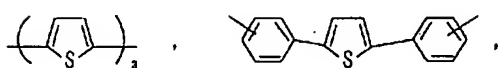
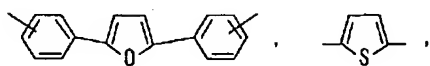
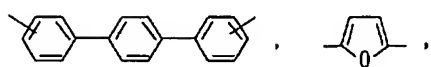
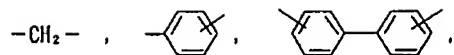
【0037】

【化14】



13

14



【0038】

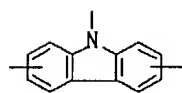
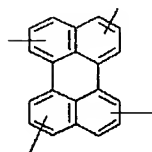
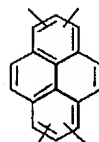
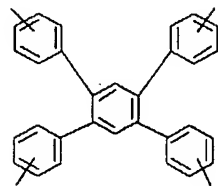
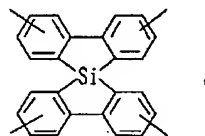
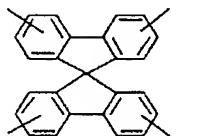
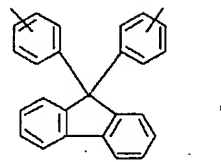
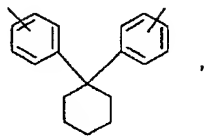
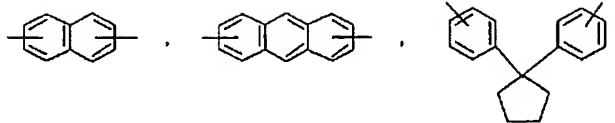
【化15】

(9)

特開 2003-217856

15

16



【0039】

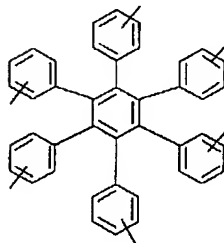
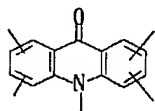
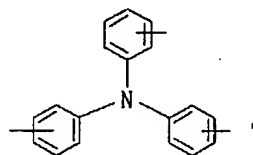
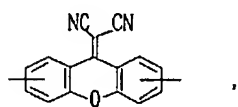
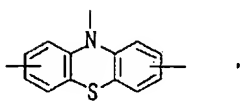
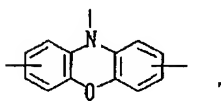
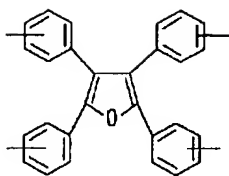
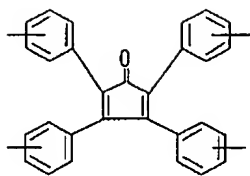
【化16】

(10)

特開2003-217856

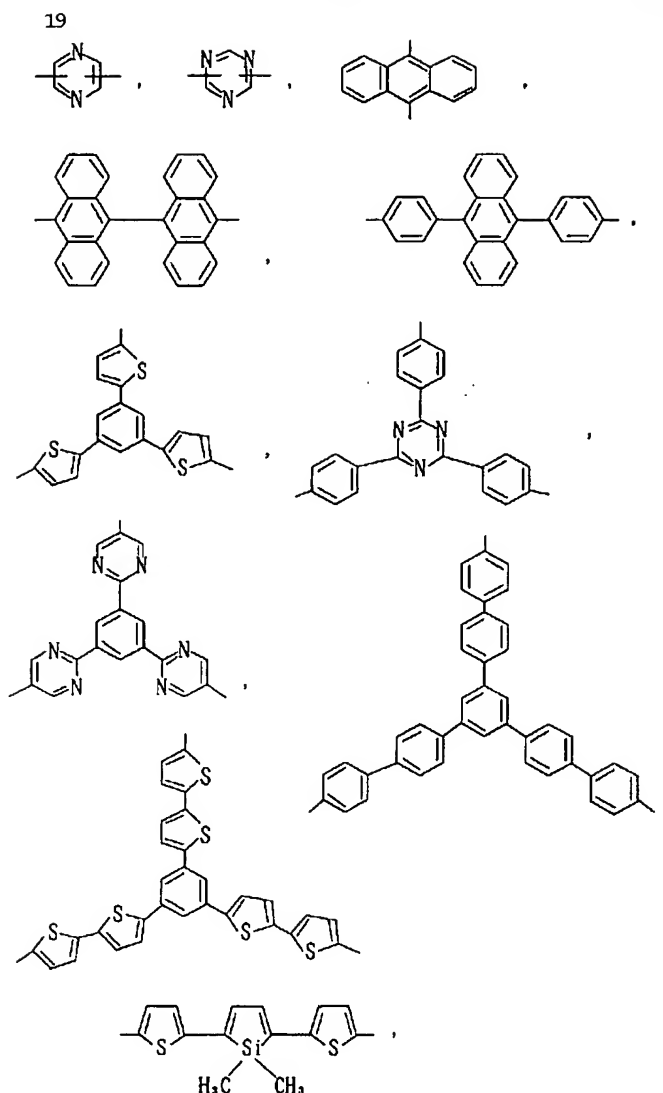
17

18



【0040】

【化17】



【0041】Lで表される連結基は置換基を有してもよく、置換基としては例えばAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0042】一般式(I)で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式(II)で表される化合物である。

【0043】

【化18】

一般式(II)

$L \leftarrow B)_m$

【0044】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Bは二つ以上の5員環および/または6員環の芳香族環が縮合したヘテロ環基を表し、Bで表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。Bで表されるヘテロ環基として好ましくは5員環または6員環の芳香族環が2ないし6個縮合したものであり、更に好ましくは2ないし3個、特に好ましくは2個の芳香族ヘテロ環が縮合したものである。この場合のヘテロ原子として好ましくは、N、O、S、Se、Te原子であり、より好ましくはN、O、S原子であり、更に好ましくはN原子である。Bで表されるヘテロ環基を構成する芳香族環の具体例としては、例えばベンゼン、フラン、チオフェン、ピ

ラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジ  
ン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、チアゾール、  
オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チ  
アジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレ  
ナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはイ  
ミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリミ  
ジン、ビリダジン、チアゾール、オキサゾールであり、  
より好ましくはイミダゾール、チアゾール、オキサゾー  
ル、ビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジンであ  
る。

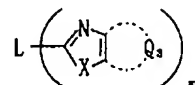
【0045】Bで表される縮合環の具体例としては、例  
えばベンゾフラン、ベンゾチオフェン、インドール、イン  
ダゾール、イソベンゾフラン、ベンズイミダゾール、  
ベンゾトリアゾール、ベンズオキサゾール、ベンズチア  
ゾール、ベンズセレナゾール、ベンズテルラゾール、イン  
ドリジン、プリン、プテリジン、カルボリン、ピロロ  
イミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾ  
ール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロビリミジン、ピ  
ラゾロトリアジン、トリアゾロビリジン、テトラザイン  
デン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、イミ  
ダゾイミダゾール、イミダゾビリジン、イミダゾピラジ  
ン、イミダゾビリミジン、イミダゾピリダジン、オキサ  
ゾロビリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロビリミ  
ジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロビリジン、チア  
ゾロピラジン、チアゾロビリミジン、チアゾロピリダジ  
ン、ビリジノピラジン、ピラジノピラジン、ピラジノピ  
リダジン、ナフチリジン、イミダゾトリアジンなどが挙  
げられ、好ましくはイミダゾビリジン、イミダゾピラジ  
ン、イミダゾビリミジン、イミダゾピリダジン、オキサ  
ゾロビリジン、オキサゾロピラジン、オキサゾロビリミ  
ジン、オキサゾロピリダジン、チアゾロビリジン、チア  
ゾロピラジン、チアゾロビリミジン、チアゾロピリダジ  
ン、ビリジノピラジン、ピラジノピラジンであり、更に  
好ましくはイミダゾビリジン、オキサゾロビリジン、チ  
アゾロビリジン、ビリジノピラジン、ピラジノピラジン  
であり、特に好ましくはイミダゾビリジンである。Bで  
表されるヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基と  
しては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の  
置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換  
基も同様である。

【0046】一般式(I)で表される化合物のうち、よ  
り好ましくは下記一般式(III)又は(XI)で表される  
化合物である。

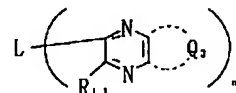
【0047】

【化19】

一般式(III)



一般式(XI)



10

20

30

40

50

【0048】一般式(III)について説明する。m、L  
は、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であ  
り、また好ましい範囲も同様である。XはO、S、S  
e、TeまたはN-Rを表す。Rは水素原子、脂肪族炭  
化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。Q<sub>3</sub>は  
芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Rで  
表される脂肪族炭化水素基として好ましくは、アルキル  
基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数  
1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えば  
メチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチ  
ル、n -オクチル、n -デシル、n -ヘキサデシル、シ  
クロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが  
挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~  
20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは  
炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテ  
ニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニ  
ル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素  
数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例え  
ばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)  
であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基であ  
る。

【0049】Rで表されるアリール基として好ましくは  
炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に  
好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2-  
メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフ  
ェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチ  
ルフェニル、ペンタフルオロフェニル、2-ビフェニル  
ル、3-ビフェニルル、4-ビフェニルル、1-ナフチ  
ル、2-ナフチル、1-ビレニルなどが挙げられる。R  
で表されるヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基  
(好ましくは炭素数1~20、好ましくは炭素数1~1  
2、更に好ましくは炭素数2~10のヘテロ環基)であ  
り、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン  
原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。  
Rで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロ  
リジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、  
イミダゾリン、イミダゾール、ベンズイミダゾール、ナ  
フトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズ  
チアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキ  
サゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフト

オキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ビリジンを、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントロリン、テトラザインデンなどが挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ビリジン、キノリン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、トリアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ビリジン、キノリンであり、特に好ましくはキノリンである。

【0050】Rで表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有してもよく、置換基としては一般式(1)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。Rとして好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基、芳香族アゾール基である。

【0051】Xとして好ましくはO、S、N-Rであり、より好ましくはO、N-Rであり、更に好ましくはN-Rであり、特に好ましくはN-Ar(Arはアリール基、芳香族アゾール基であり、より好ましくは炭素数6~30のアリール基、炭素数2~30の芳香族アゾール基、更に好ましくは炭素数6~20のアリール基、炭素数2~16の芳香族アゾール基、特に好ましくは炭素数6~12のアリール基、炭素数2~10の芳香族アゾール基である。)である。

【0052】Q<sub>1</sub>は芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>1</sub>で形成される芳香族環として好ましくは5または6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。Q<sub>1</sub>で形成される芳香族環の具体例としては、例えばベンゼン、フラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジンであり、より好ましくはビリジン、ピラジンであり、更に好ましくはビリジンである。Q<sub>1</sub>で形成される芳香族環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(1)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

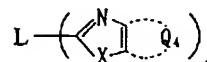
【0053】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(IV)で表される化合物であ

る。

【0054】

【化20】

一般式(IV)



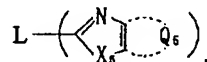
【0055】式中、m、Lは、それぞれ一般式(1)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Xは一般式(III)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>4</sub>は含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。Q<sub>4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジンであり、より好ましくはビリジン、ピラジンであり、更に好ましくはビリジンである。Q<sub>4</sub>で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(1)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0056】一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(V)で表される化合物である。

【0057】

【化21】

一般式(V)



【0058】式中、m、Lは、それぞれ一般式(1)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。X<sub>5</sub>はO、SまたはN-Rを表す。Rは一般式(II)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>5</sub>で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジンであり、より好ましくはビリジン、ピラジンであり、更に好ましくはビリジンである。Q<sub>5</sub>で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置

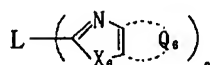
換基としては一般式 (I) における A で表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

【0059】一般式 (III) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (VI) で表される化合物である。

【0060】

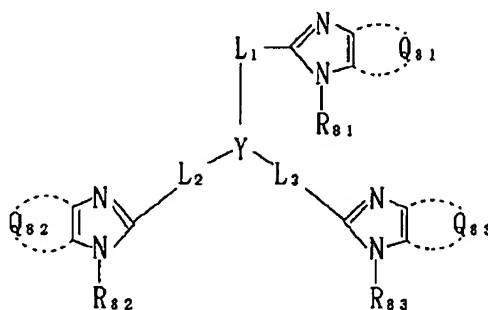
【化22】

一般式 (VI)



【0061】式中、L は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。X<sub>n</sub> は一般式 (V) における X<sub>1</sub> と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>n</sub> は一般式 (V) における Q<sub>1</sub> と同義であり、また好ましい範囲も同様である。n は 2 ないし 8 の整数を表し、好ましくは 2 ないし 6、より好ましくは 2 ないし 4 であり、更に好ましくは 2 または 3 であり、特に好ましくは 3 である。一般式 (III) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (VII) で表さ\*

一般式 (VII)



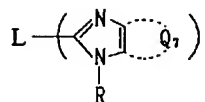
【0066】式中、R<sub>81</sub>、R<sub>82</sub> および R<sub>83</sub> は、それぞれ一般式 (III) における R と同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>81</sub>、Q<sub>82</sub> および Q<sub>83</sub> は、それぞれ一般式 (V) における Q<sub>1</sub> と同義であり、また好ましい範囲も同様である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub> および L<sub>3</sub> は、それぞれ一般式 (I) における L と同義である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> として好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびこれらの組合わせから成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ビリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾールおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオフェンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、最も好ましくは単結合である。L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> は置換基を有してもよく、置換基

\*れる化合物である。

【0062】

【化23】

一般式 (VII)



10 【0063】式中、L は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。R は一般式 (III) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>1</sub> は一般式 (V) における Q<sub>1</sub> と同義であり、また好ましい範囲も同様である。n は一般式 (VI) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0064】一般式 (III) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (VIII) で表される化合物である。

20 【0065】

【化24】

としては一般式 (I) における A で表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。

【0067】Y は窒素原子または芳香族環を表す。芳香族環としては 5 または 6 員の芳香族環であり、より好ましくはベンゼン環、6 員の芳香族アゾール環である。芳香族環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピロール、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピレン、フェナントレン、トリフェニレン、ビリジン、ピリミジン、ピリダジン、ピラジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはベンゼン、ビリジン、ピリミジン、トリアジンであり、より好ましくは 1, 3, 5-ベンゼントリイル基、2, 4, 6-ピリジントリイル基、1, 3, 5-ピリミジントリイル基、2, 4, 6-トリアジントリイル基であり、特に好ましくは 1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。Y は可能な場合には置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。Y として好まし

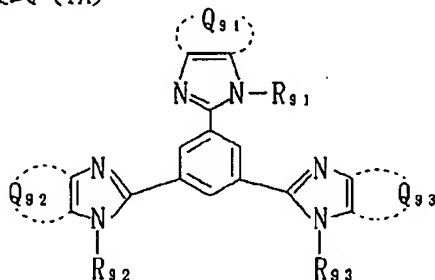
27

くは窒素原子または無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。一般式(III)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(IX)で表される化合物である。

【0068】

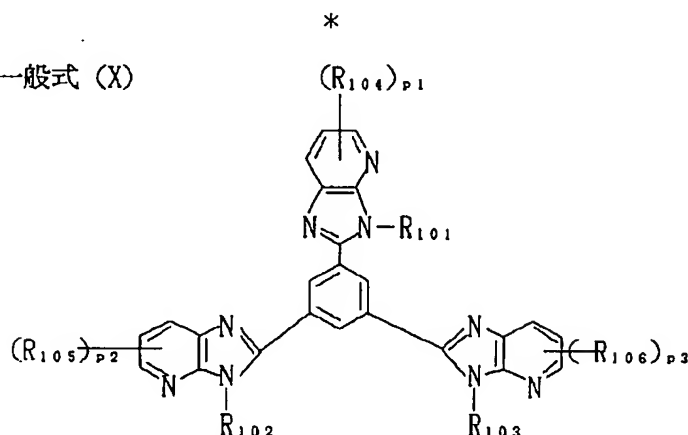
【化25】

一般式(IX)



10

一般式(X)



【0071】式中、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$  および  $R_{103}$  は、それぞれ一般式(III)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{104}$ 、 $R_{105}$  および  $R_{106}$  は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。また可能な場合、置換基同士が連結して環を形成してもよい。 $p_1$ 、 $p_2$  および  $p_3$  は、それぞれ0ないし3の整数を表し、好ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に好ましくは0である。

【0072】次に一般式(XI)について説明する。 $m$ 、 $L$ は、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Q_{11}$ は一般式(III)におけるQと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{11}$ は水素原子または置換基を表す。 $R_{11}$ で表される置換基としては例えば一般式(I)におけるAで表されるヘテロ環基の置換基として挙げたものが適用できる。 $R_{11}$ で表される置換基として好ましくは、脂肪族炭化水素基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であ

\*【0069】式中、 $R_{91}$ 、 $R_{92}$  および  $R_{93}$  は、それぞれ一般式(III)におけるRと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Q_{91}$ 、 $Q_{92}$  および  $Q_{93}$  は、それぞれ一般式(V)におけるQと同義であり、また好ましい範囲も同様である。一般式(III)で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式(X)で表される化合物である。

【0070】

【化26】

り、より好ましくは、アルキル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、isobutyl、tert-butyl、n-octyl、n-decyl、n-hexadecyl、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、4-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチルなどが挙げられる。)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。芳香族ヘテロ環としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピロール、フラン、チオフェン、イミダゾリン、イミダゾール、ベン

40

50



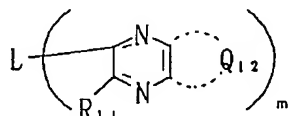
ズイミダゾール、ナフトイミダゾール、チアゾリジン、チアゾール、ベンズチアゾール、ナフトチアゾール、イソチアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、ベンズオキサゾール、ナフトオキサゾール、イソオキサゾール、セレナゾール、ベンズセレナゾール、ナフトセレナゾール、ピリジン、キノリン、イソキノリン、インドール、インドレニン、ピラゾール、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントリジン、プテリジン、フェナントロリン、テトラザインデン、カルバゾールなどが挙げられ、好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ピリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリンである。)であり、更に好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基である。R<sub>11</sub>で表される置換基は、更に置換されてもよく、また可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0073】一般式(XI)で表される化合物のうち、より好ましくは下記一般式(XII)で表される化合物である。

【0074】

【化27】

一般式(XII)



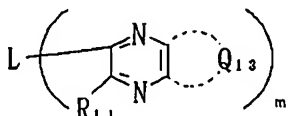
【0075】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>12</sub>は一般式(IV)におけるQ<sub>1</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>11</sub>は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0076】一般式(XI)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(XIII)で表される化合物である。

【0077】

【化28】

一般式(XIII)



【0078】式中、m、Lは、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様で

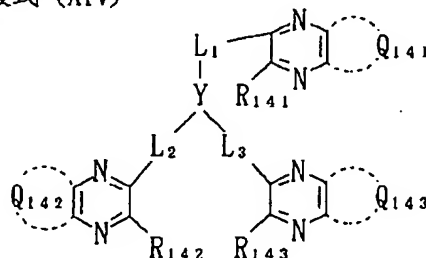
ある。Q<sub>13</sub>は一般式(V)におけるQ<sub>2</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>11</sub>は一般式(XI)におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0079】一般式(XI)で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式(XIV)で表される化合物である。

【0080】

【化29】

一般式(XIV)



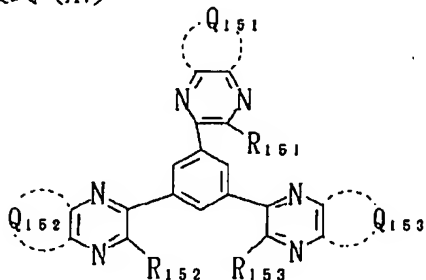
【0081】式中、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、L<sub>3</sub> およびYは、それぞれ一般式(VIII)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Q<sub>141</sub>、Q<sub>142</sub> およびQ<sub>143</sub> は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>2</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>141</sub>、R<sub>142</sub> およびR<sub>143</sub> は、それぞれ一般式(XI)におけるR<sub>11</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0082】一般式(XI)で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式(XV)で表される化合物である。

【0083】

【化30】

一般式(XV)



【0084】式中、Q<sub>151</sub>、Q<sub>152</sub> およびQ<sub>153</sub> は、それぞれ一般式(V)におけるQ<sub>2</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。R<sub>151</sub>、R<sub>152</sub> およびR<sub>153</sub> は、それぞれ一般式(XI)におけるR<sub>11</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。

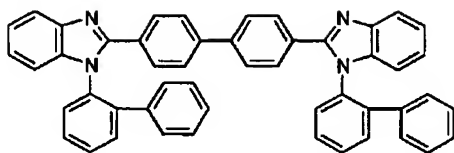
【0085】以下に本発明の一般式(I)で表される化合物(本発明の化合物と称する)の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

31

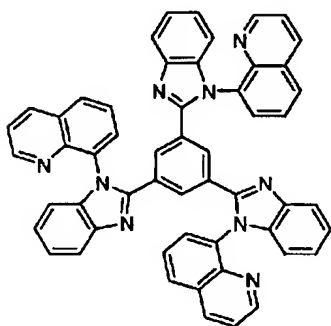
【0086】

【化31】

1.

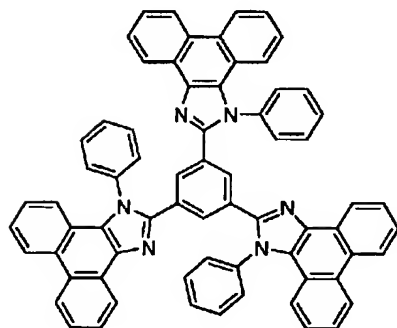


2.



10

3.



20

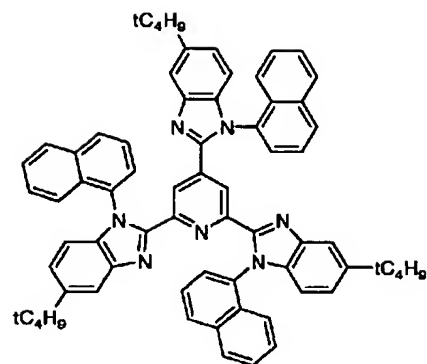
30

【0087】

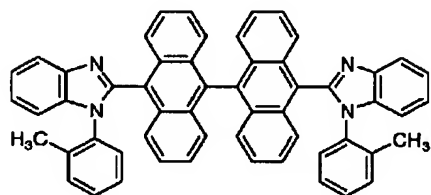
【化32】

33  
4.

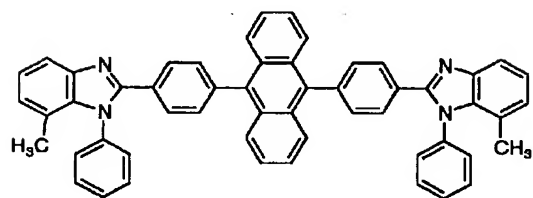
34



5.

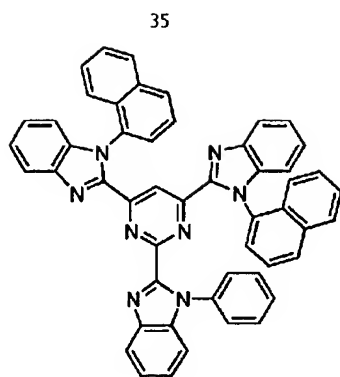


6.

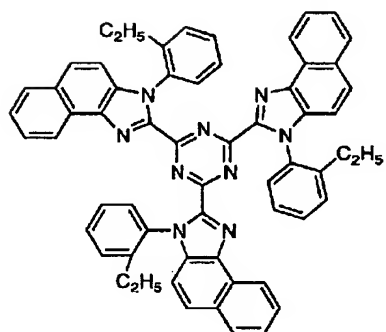


【 0 0 8 8 】  
【 化 3 3 】

7.

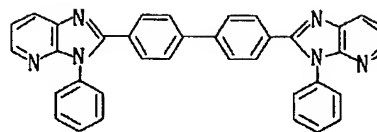


8.

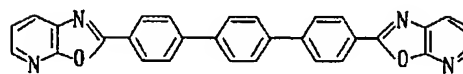


[0089]  
[化34]

9.

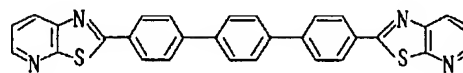


10.

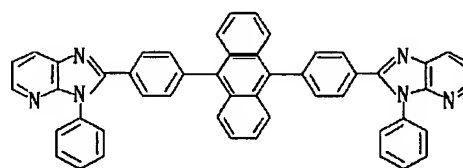


10

11.

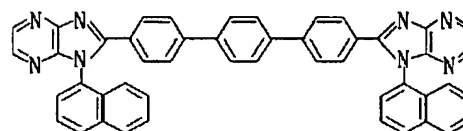


12.

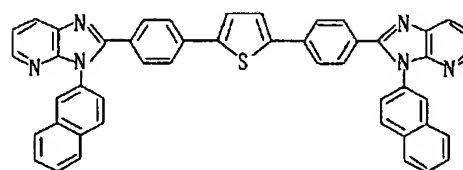


20

13.



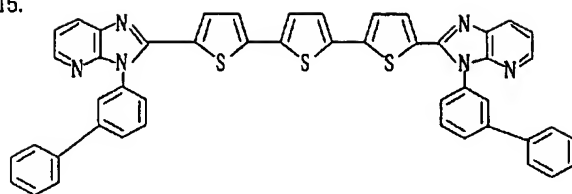
14.



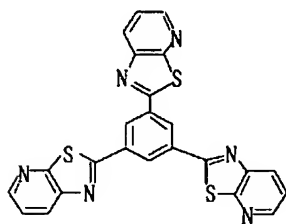
30

[0090]  
[化35]

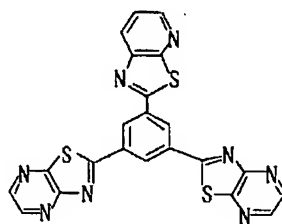
37  
15.



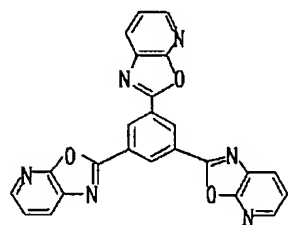
16.



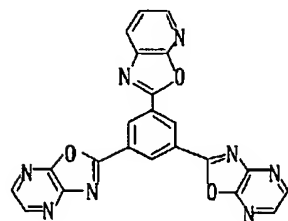
17.



18.



19.



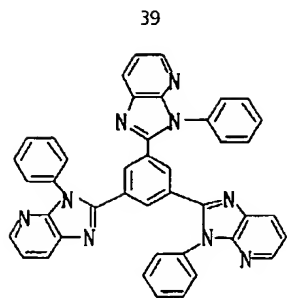
{0091}

{化36}

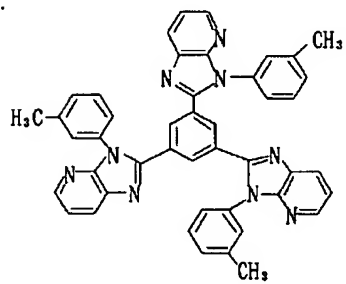
(21)

特開 2003-217856

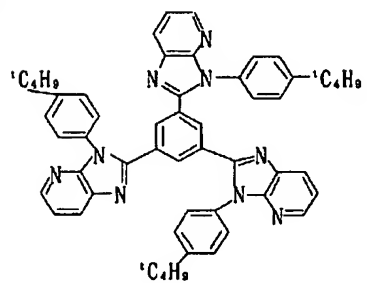
20.



21.

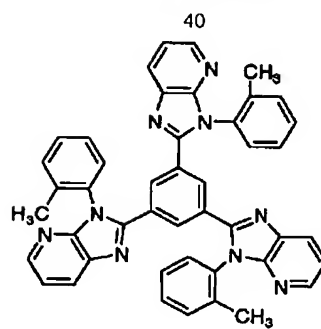


22.



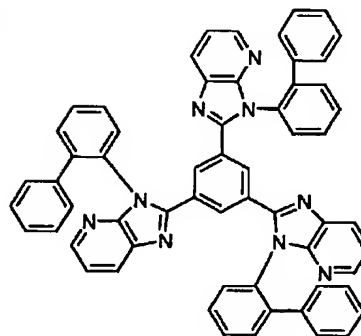
[0092]  
[化37]

23.



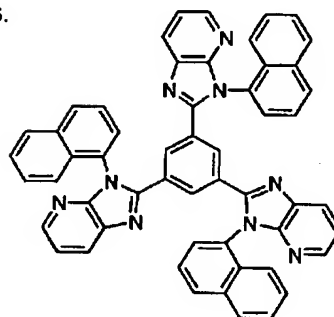
10

24.



20

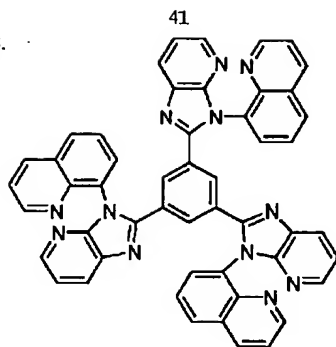
25.



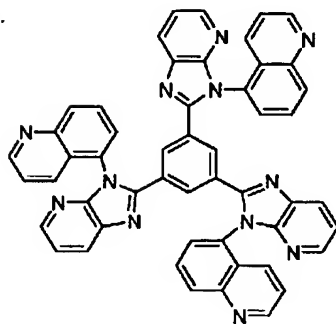
30

[0093]  
[化38]

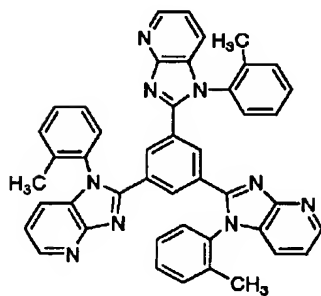
26.



27.

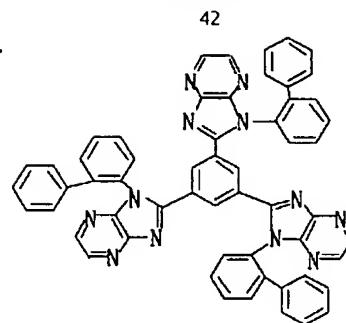


28.



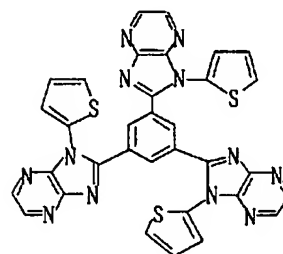
[0094]  
[化39]

29.



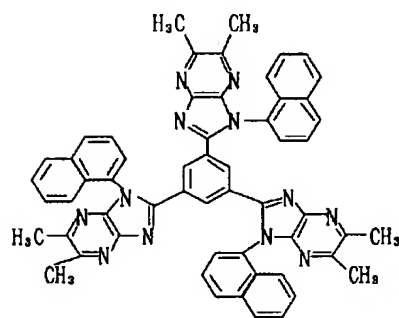
10

30.



20

31.



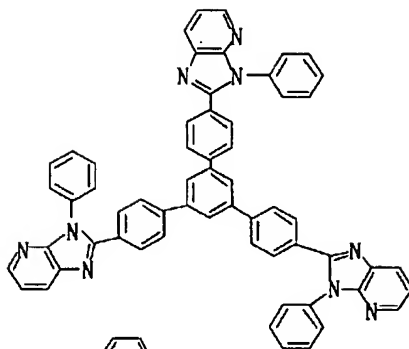
30

[0095]  
[化40]

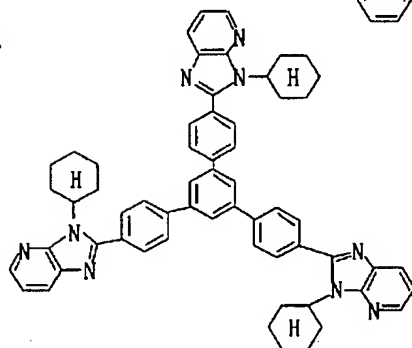
43

44

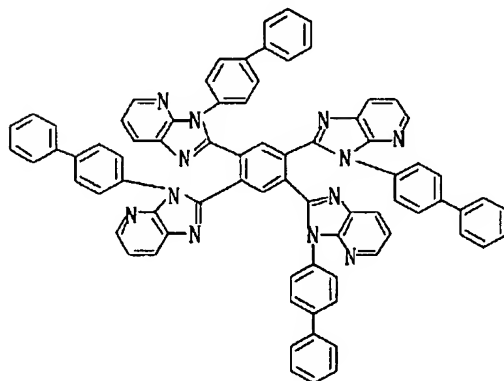
32.



33.



34.



[0096]

[化41]

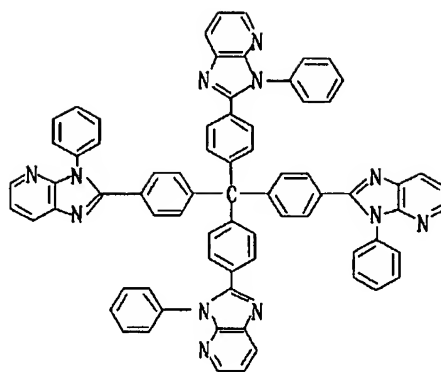


(24)

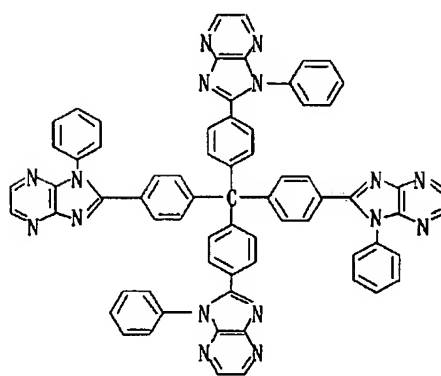
特開 2 0 0 3 - 2 1 7 8 5 6

45  
35.

46



36.

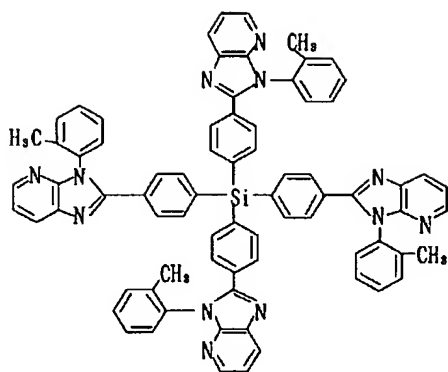


【 0 0 9 7 】

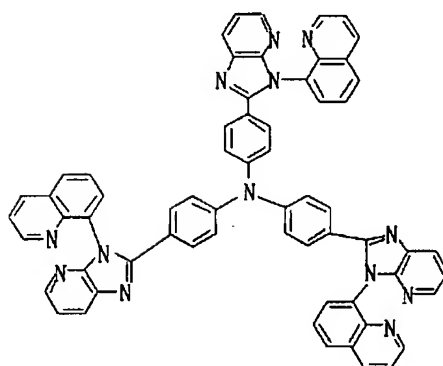
【 化 4 2 】

47  
37.

48



38.

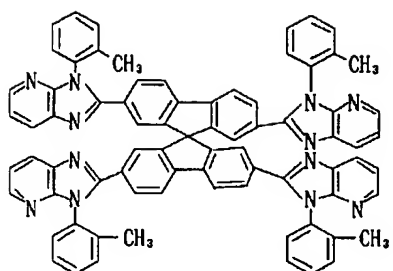


【0098】

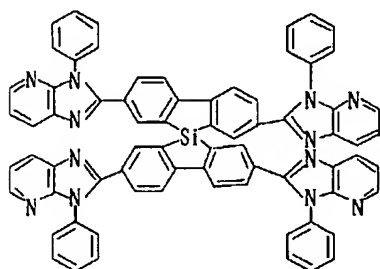
【化43】

39.

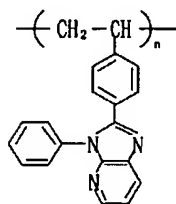
49



40.



41.



質量平均分子量 16,500  
(ポリスチレン換算)

【0099】

【化44】

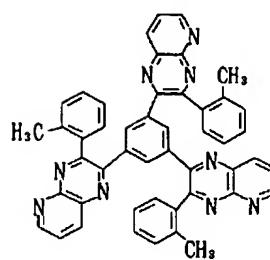
10

20

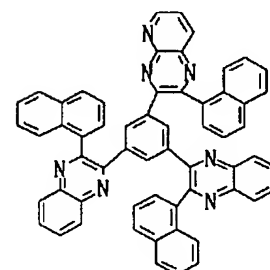
30

42.

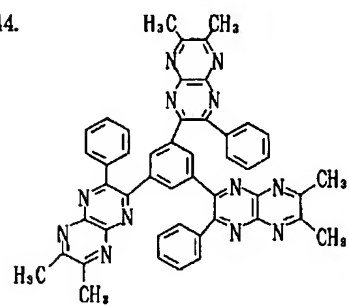
50



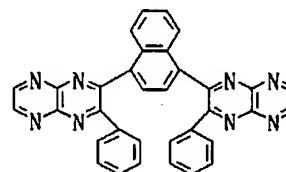
43.



44.



45.



【0100】

【化45】

(27)

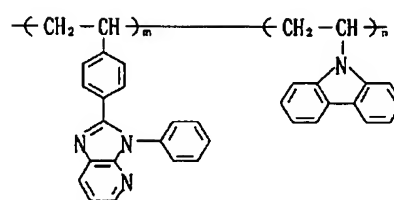
特開 2 0 0 3 - 2 1 7 8 5 6

52

{ 0 1 0 1 }

{ 化 4 6 }

49.



10

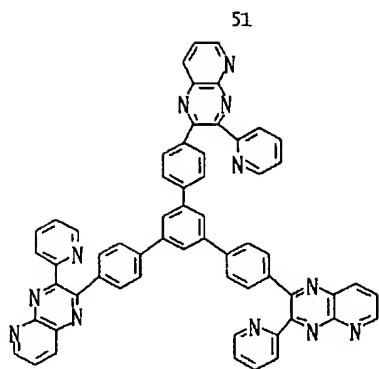
質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算)

 $m : n = 1 : 1$  (モル比)

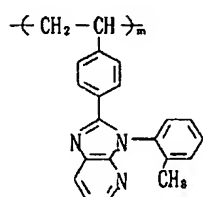
{ 0 1 0 2 }

{ 化 4 7 }

46.



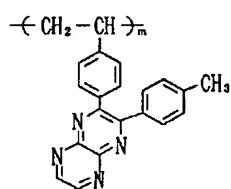
47.



質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

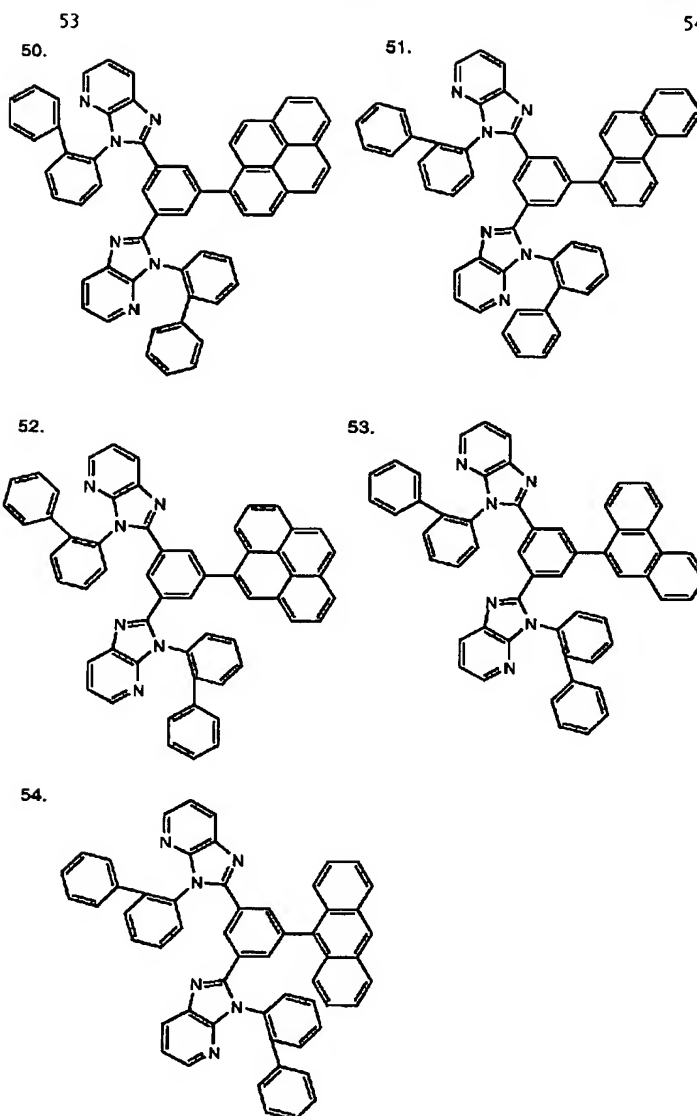
20

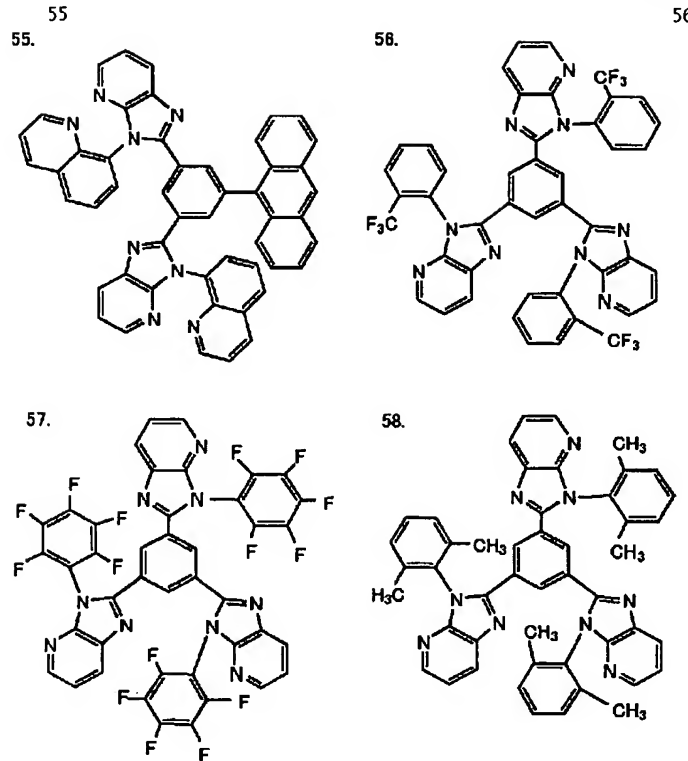
48.



質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算)

30





【0104】一般式(Ⅰ)～(xv)で表される本発明の化合物は、特公昭44-23025号、同48-8842号、特開昭53-6331号、特開平10-92578号、米国特許3,449,255号、同5,766,779号、J. Am. Chem. Soc., 94, 2414 (1972)、Helv. Chim. Acta, 63, 413 (1980)、Liebigs Ann. Chem., 1423 (1982)、特願2000-218967号などに記載の方法を参考にして合成できる。

【0105】次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、転写法、電子写真法、印刷法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0106】本発明の化合物(一般式(Ⅰ)で表される化合物)を発光素子用材料として用いた場合、ホール注入・輸送層、電子注入・輸送層、発光層のいずれに用いてもよいが、電子注入・輸送層および/または発光層として用いることが好ましく、より好ましくは電子注入・輸送層として用いることが好ましく、電子輸送材料として作用するのがさらに好ましい。

【0107】本発明の発光素子は、一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物層を有し、かつ2種以上の電子輸送材料を含有した発光素子であり、前

記電子輸送材料の少なくとも1種が一般式(Ⅰ)で表される化合物であることが好ましい。

【0108】本発明の発光素子は陽極、陰極の一対の電極間に発光層と電子輸送層を含む複数の有機化合物膜を形成した素子であり、発光層、電子輸送層のほか正孔注入層、正孔輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0109】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0110】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートをしたものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0111】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの陰極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）またはそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）またはそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0112】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動さ

せる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。発光層に用いる化合物としては励起一重項状態から発光するもの（蛍光発光性化合物）、励起三重項状態から発光するもの（燐光発光性化合物）のいずれでもよく、例えばベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノールの金属錯体およびこれらの誘導体、遷移金属錯体（例えば、トリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（III）などのオルトメタル化錯体等）や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリフルオレン等のポリマー化合物等が挙げられる。

【0113】本発明においては発光層に燐光発光性化合物を含有することが、発光効率の点で好ましい。本発明における燐光発光性化合物は、多重度の異なる項間の遷移に基づく発光（例えば三重項→一重項）が他の物質よりも強いものと定義する。好ましくは常温におけるりん光量子収率が25%以上のものであり、より好ましくは40%以上のものであり、さらに好ましくは60%のものであり、特に好ましくは80%以上のものであり、例えば金属を含まない有機化合物や金属-ヘテロ原子結合を有する金属錯体、金属-炭素結合を有する有機金属錯体などが挙げられ、下記に記載のオルトメタル化金属錯体などが挙げられる。次に有機金属錯体について説明する。有機金属錯体は、例えば「有機金属化学-基礎と応用」p150、232裳華房社山本明夫著（1982年発行）の6ページで定義されているように、金属と有機基が金属-炭素の直接結合により結びついた化合物のことを指す。次に、本発明で用いるオルトメタル化金属錯体について説明する。オルトメタル化金属錯体とは、例えば「有機金属化学-基礎と応用」p150、232裳華房社山本明夫著1982年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」p71-p77、p135-p146 Springer-Verlag社 H.Yersin著1987年発行等に記載されている化合物群の総称である。金属錯体の中心金属としては、遷移金属であればいずれのものも使用可能であるが、本発明では、中でもロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム、レニウム、オスミウム等を好ましく用いることができる。この中でより好ましいものは白金、イリジウム、ルテニウム、レニウムであり、更に好ましくは白金、イリジウムであり、特に好ましくはイリジウムである。

【0114】オルトメタル化金属錯体の金属の価数は特

に限定しないが、イリジウムを用いる場合には3価が好ましい。オルトメタル化金属錯体の配位子は、オルトメタル化金属錯体を形成し得る物であれば特に問わないが、例えば、アリール基置換含窒素ヘテロ環（アリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ビレニル基などが挙げられ、含窒素ヘテロ環としては、例えば、ビリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフチリジン、シンノリン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアジアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる）、ヘテロアリール基置換含窒素ヘテロ環（ヘテロアリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例えば前記の含窒素ヘテロ環誘導体を含有する基、チエニル基、フリル基などが挙げられる）、7、8-ベンゾキノリン、ホスフィノアリール、ホスフィノヘテロアリール、ホスフィノキシアリール、ホスフィノキシヘテロアリール、アミノメチルアリール、アミノメチルヘテロアリール等およびこれらの誘導体が挙げられる。アリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環、ヘテロアリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環、7、8-ベンゾキノリンおよびこれらの誘導体が好ましく、フェニルビリジン、チエニルビリジン、7、8-ベンゾキノリンおよびこれらの誘導体がさらに好ましく、チエニルビリジンおよびその誘導体、7、8-ベンゾキノリンおよびその誘導体が特に好ましい。

【0115】本発明の化合物は、オルトメタル化金属錯体を形成するに必要な配位子以外に、他の配位子を有しても良い。他の配位子としては種々の公知の配位子が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」 Springer-Verlag社 H. Yersin著1987年発行、「有機金属化学-基礎と応用-」裳華房社山本明夫著1982年発行等に記載の配位子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子（好ましくは塩素配位子）、含窒素ヘテロ環配位子（例えばビビリジル、フェナントロリンなど）、ジケトン配位子であり、より好ましくは塩素配位子、ビビリジル配位子である。

【0116】本発明に用いるオルトメタル化金属錯体が有する配位子の種類は1種類でも良いし、複数の種類があっても良い。錯体中の配位子の数は、好ましくは1~3種類であり、特に好ましくは1、2種類であり、さらに好ましくは1種類である。

【0117】本発明に用いるオルトメタル化金属錯体の炭素数は、好ましくは5~100、より好ましくは10~80、さらに好ましくは14~50である。

【0118】本発明に用いるオルトメタル化金属錯体の好ましい形態は、特開2001-181616号、特開2001-181617号、特開2001-247859号、特願2000-89274号、特願2000-398908号、特願2001-45476号、特願2001-189539号、特願2001-219909号、特願2001-239281号、特願2001-248165号、WO00/57676号、WO00/70655号、WO01/39234A2号、WO01/41512A1号、米国特許公開6097147A号記載の化合物などが挙げられる。

【0119】発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、転写法、電子写真法、印刷法、LB法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。

【0120】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポリフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、有機シラン化合物、およびこれらの誘導体、カーボン膜等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm~1μmであり、更に好ましくは10nm~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、インクジェット法、転写法、電子写真法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリス



チレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0121】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。好ましくは電子注入層及び又は電子輸送層に本発明の化合物を含有するものであるが、本発明の化合物の他の材料を用いることもできる。その具体例としては、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、有機シラン化合物、8-キノリノールの金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体およびこれらの誘導体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm〜5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm〜1μmであり、更に好ましくは10nm〜500nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0122】本発明の効果（特に発光効率向上、駆動電圧低下、耐久性向上）は、電子輸送層に2種以上の電子輸送材料を含有し、且つそのうちの少なくとも1種が本発明の一般式(1)〜(xv)で表される化合物であることにより発現する。また、本発明の効果をより有効に発現するためには、電子輸送層を2層以上の積層構造にすることが好ましい。また、本発明の一般式(1)〜(xv)で表される化合物の少なくとも1種と他の電子輸送材料を同一層内に含有することも好ましい。更に、電子輸送層が2層以上からなり、電子輸送層の少なくとも1層に一般式(1)〜(xv)で表される化合物の少なくとも1種を含有し、且つ他の電子輸送層に他の電子輸送材料を含有することが好ましい。更に、電子輸送層に一般式(1)〜(xv)で表される化合物の少なくとも2種を含有することが好ましい。また、簡便な製造法により大面積で、且つ高効率、高耐久性の素子を作製するためには、2種以上の電子輸送材料を含有し、且つ電子輸送層の少なくとも1層が一般式(1)〜(xv)で表される化合物の少なくとも1種をポリマーに分散（均一溶解した場合も含む）した層であることが好ましい。更に、従

来困難であった色純度良好かつ高効率の青色発光を実現するためには、2種以上の電子輸送材料を含有し、青色発光層と陰極との間の少なくとも1層に一般式(1)〜(xv)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を設けることが好ましい。更に、駆動電圧低下、発光効率向上の点において、発光層と陰極間に2層以上の層を有し、発光層に接する層に前記一般式(1)〜(xv)で表される化合物を少なくとも1種含有し、且つ一般式(1)〜(xv)で表される化合物を含有する層と陰極との間に、一般式(1)〜(xv)で表される化合物より電子親和力の大きい化合物を含有する層を設けることが好ましい。

【0123】本発明の一般式(1)〜(xv)で表される化合物と併用して用いる電子輸送材料として好ましくは、構造の異なる一般式(1)〜(xv)で表される化合物、金属錯体型電子輸送材料である。より好ましくはともに一般式(1)〜(xv)で表される化合物の組合せであるか、一般式(1)〜(xv)で表される化合物と金属錯体型電子輸送材料の組合せである。また、電子輸送層を2層以上に積層する場合に好ましくは発光層に接する層に一般式(1)〜(xv)で表される化合物を用い、その層と陰極との間に一般式(1)〜(xv)で表される化合物より電子親和力の大きい化合物を用いることである。一般式(1)〜(xv)で表される化合物より電子親和力の大きい化合物として好ましくは金属錯体型電子輸送材料である。

【0124】上記の金属錯体型電子輸送材料として好ましくは、分子内にヒドロキシ基とアゾール部を有する配位子を持つ金属錯体であり、より好ましくはAl、Zn、Ga、B、Be錯体であり、更に好ましくはAl、Zn、Ga錯体である。このような金属錯体としては例えば下記のもの挙げられる。

【0125】

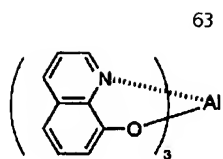
【化49】

(33)

特開 2003-217856

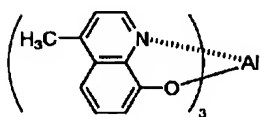
64

K1



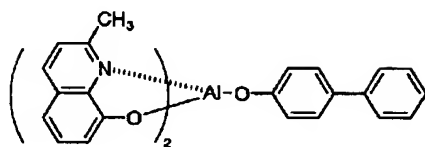
{ 0 1 2 6 }  
{ 化 5 0 }

K2

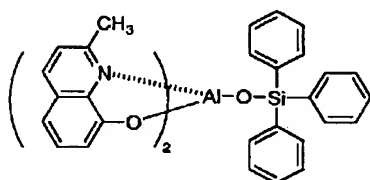


10

K3



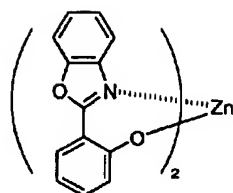
K4



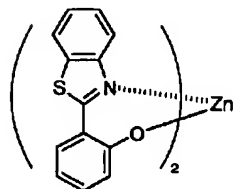
20

65

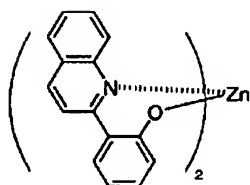
K5



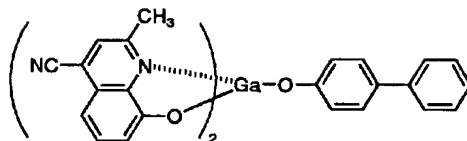
K6



K7



K8



【0127】上述の電子輸送層に電子輸送材料を2種以上含有する場合の各材料の組成比は特に限定はないが、好ましくは一般式(Ⅰ)～(ⅩⅤ)で表される化合物が10～90質量%、より好ましくは20～80質量%、更に好ましくは50～80質量%である。また、電子輸送材料の少なくとも1種のガラス転移温度が130℃以上、より好ましくはガラス転移温度が140℃以上の化合物の組合せが好ましく、更に好ましくは用いる電子輸送材料の全てのガラス転移温度が140℃以上の場合である。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法(スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など)、インクジェット法、転写法、電子写真法、印刷法などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0128】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、

GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE(分子線エピタキシー)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、転写法、印刷法などを適用できる。

【0129】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明

するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

#### 実施例1

25mm×25mm×0.7mmのガラス基板上にITOを150nmの厚さで製膜したもの（東京三容真空（株）製）を透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、銅フタロシアニンを膜厚約5nm、次にホール輸送材料Aを膜厚約40nm、発光層材料を膜厚約20nm（青色発光材料Bの蒸着速度0.001nm/秒、発光層ホスト材料Cの蒸着速度0.4nm/秒で共蒸着）、電子輸送材料（化合物、膜厚は表1に記載）、更にLiFを膜厚約1nmを順に10<sup>-3</sup>～10<sup>-4</sup>Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。\*

表1

| 試料<br>No. | 電子輸送材料<br>(膜厚 nm)                   | 発光波長<br>$\lambda_{\max}$<br>(nm) | CIE色度座標<br>(x,y) | 200cd/m <sup>2</sup><br>発光時の<br>電圧(V) | 外部量子<br>効率(%) <sup>a)</sup> | 経時後外部<br>量子効率<br>(%) <sup>a)</sup> | 備考  |
|-----------|-------------------------------------|----------------------------------|------------------|---------------------------------------|-----------------------------|------------------------------------|-----|
| 101       | 電子輸送材 K1(36)単層                      | 474                              | 0.18,0.21        | 12                                    | 0.8                         | 0.2                                | 比較例 |
| 102       | 電子輸送材 K2(36)単層                      | 472                              | 0.17,0.20        | 13                                    | 0.7                         | 0.2                                | 〃   |
| 103       | 例示化合物 2(36)単層                       | 460                              | 0.15,0.16        | 11                                    | 1.0                         | 0.8                                | 〃   |
| 104       | 例示化合物 23(36)単層                      | 461                              | 0.15,0.14        | 10                                    | 1.8                         | 0.7                                | 〃   |
| 105       | 例示化合物 24(36)単層                      | 461                              | 0.15,0.15        | 10                                    | 1.9                         | 0.8                                | 〃   |
| 106       | 例示化合物 25(36)単層                      | 462                              | 0.15,0.15        | 10                                    | 1.9                         | 0.9                                | 〃   |
| 107       | 例示化合物 26(36)単層                      | 462                              | 0.15,0.14        | 10                                    | 2.0                         | 1.0                                | 〃   |
| 108       | 例示化合物 43(36)単層                      | 464                              | 0.15,0.18        | 11                                    | 1.2                         | 0.4                                | 〃   |
| 109       | 電子輸送材 K1(18)/電子輸送材 K2(18)積層         | 473                              | 0.18,0.20        | 12                                    | 0.8                         | 0.3                                | 〃   |
| 110       | 電子輸送材 K1:電子輸送材 K2=50:50(wt%比)(36)単層 | 474                              | 0.18,0.21        | 12                                    | 0.8                         | 0.3                                | 〃   |
| 111       | 例示化合物 2(18)/電子輸送材 K1(18)積層          | 461                              | 0.15,0.16        | 8                                     | 2.5                         | 1.8                                | 本発明 |
| 112       | 例示化合物 2(18)/電子輸送材 K2(18)積層          | 461                              | 0.15,0.16        | 8                                     | 2.6                         | 1.7                                | 〃   |
| 113       | 例示化合物 2(18)/例示化合物 26(18)積層          | 460                              | 0.15,0.16        | 7                                     | 2.7                         | 1.7                                | 〃   |
| 114       | 例示化合物 23(18)/電子輸送材 K1(18)積層         | 461                              | 0.15,0.15        | 5                                     | 2.9                         | 2.4                                | 〃   |
| 115       | 例示化合物 23(28)/電子輸送材 K1(8)積層          | 461                              | 0.15,0.15        | 5                                     | 3.0                         | 2.3                                | 〃   |
| 116       | 例示化合物 23(18)/例示化合物 26(18)積層         | 461                              | 0.15,0.14        | 6                                     | 3.1                         | 2.3                                | 〃   |
| 117       | 例示化合物 43(18)/電子輸送材 K1(18)積層         | 464                              | 0.15,0.15        | 7                                     | 2.7                         | 1.9                                | 〃   |
| 118       | 例示化合物 23:電子輸送材 K1=50:50(wt%比)(36)単層 | 465                              | 0.16,0.17        | 5                                     | 2.3                         | 1.7                                | 〃   |
| 119       | 例示化合物 23:電子輸送材 K1=80:20(wt%比)(36)単層 | 464                              | 0.15,0.16        | 6                                     | 2.4                         | 1.9                                | 〃   |
| 120       | 例示化合物 23:例示化合物 26=50:50(wt%比)(36)単層 | 461                              | 0.15,0.15        | 5                                     | 3.1                         | 2.4                                | 〃   |
| 121       | 例示化合物 24:例示化合物 25=50:50(wt%比)(36)単層 | 460                              | 0.15,0.15        | 5                                     | 3.0                         | 2.5                                | 〃   |

a) 200 cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率

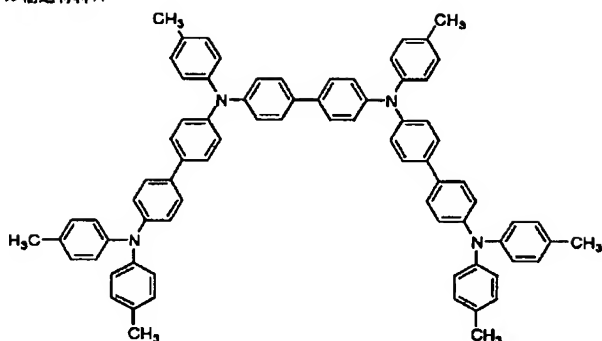
\*この上にパターンニングしたマスク（発光面積が5mm×4mmとなるマスク）を設置し、アルミニウムを膜厚約200nm蒸着して素子を作成した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長、色度座標については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果を表1に示す。

【0130】

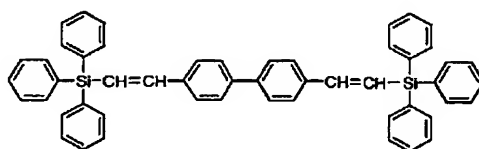
【表1】

【0131】

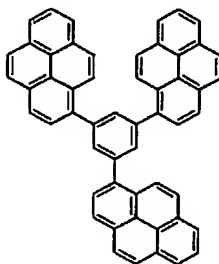
【化51】

69  
ホール輸送材料A

青色発光材料B



発光層ホスト材料C



【0132】また、これらの素子をアルゴンガスで置換したオートクレーブ中に封入し、85℃の加熱条件下7日間保存した後に、200 cd/m<sup>2</sup> 発光時の外部量子効率の測定を行った結果も表1に示す。表1中、wt%は質量%を意味する。表1の結果より、従来知られていた電子輸送材料1、2を単独で用いると青色純度、発光効率ともに悪く、耐久性も不十分であることがわかる。また、一般式(I)で表される化合物を単独で用いると、青色純度、発光効率は改善されるものの、耐久性は十分満足できるものではない。これに対し、2種以上の電子輸送材料を有し、且つ一般式(I)で表される化合物を少なくとも1種含有した本発明の素子では、青色純度、効率、耐久性ともに良好な結果が得られることがわかる。

【0133】実施例2. 実施例1と同様にエッチング、

洗浄したITOガラス基板上に、銅フタロシアニンを約10 nm蒸着した。次に実施例1のホール輸送材料Aを膜厚約40 nm、次いで発光層材料を膜厚約30 nm（化合物Dの蒸着速度0.04 nm/秒、化合物Eの蒸着速度0.4 nm/秒で共蒸着）蒸着した。次いで電子輸送材料（化合物、膜厚は表2に記載）、更にLiFを膜厚約1 nmを順に10<sup>-3</sup>~10<sup>-4</sup> Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。この上にパターンニングしたマスク（発光面積が5 mm×4 mmとなるマスク）を設置し、アルミニウムを膜厚約200 nm蒸着して素子を作成した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について実施例1と同様な評価を行った。結果を表2に示す。

【0134】

【表2】

表2

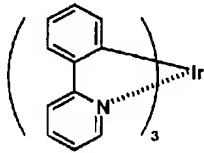
| 試料<br>No. | 電子輸送材料<br>(膜厚 nm)                     | 発光波長<br>$\lambda_{\max}$<br>(nm) | 最高輝度<br>cd/m <sup>2</sup> | 1000cd/m <sup>2</sup><br>発光時の<br>電圧(V) | 外部量<br>子効率<br>(%) <sup>a)</sup> | 経時後外<br>部量子効<br>率(%) <sup>a)</sup> | 備考  |
|-----------|---------------------------------------|----------------------------------|---------------------------|--|---------------------------------|------------------------------------|-----|
| 201       | 電子輸送材 K1(36)単層                        | 520                              | 12400                     | 12                                     | 6.2                             | 2.8                                | 比較例 |
| 202       | バソクブロン(10)/電子輸送材 K1(26)単層             | 516                              | 29800                     | 13                                     | 8.1                             | 1.5                                | 〃   |
| 203       | 例示化合物 2(36)単層                         | 515                              | 26800                     | 12                                     | 6.8                             | 2.2                                | 〃   |
| 204       | 例示化合物 23(36)単層                        | 514                              | 46200                     | 10                                     | 10.2                            | 4.1                                | 〃   |
| 205       | 例示化合物 2(18)/電子輸送材 K1(18)積層            | 515                              | 70300                     | 7                                      | 13.4                            | 8.9                                | 本発明 |
| 206       | 例示化合物 23(18)/電子輸送材 K1(18)積層           | 514                              | 81100                     | 6                                      | 18.0                            | 11.3                               | 〃   |
| 207       | 例示化合物 2(18)/例示化合物 26(18)積層            | 515                              | 93000                     | 8                                      | 18.8                            | 12.4                               | 〃   |
| 208       | 例示化合物 23(18)/例示化合物 26(18)積層           | 515                              | 87600                     | 6                                      | 19.9                            | 12.9                               | 〃   |
| 209       | 例示化合物 23: 電子輸送材 K1=50: 50(wt%比)(36)単層 | 514                              | 74000                     | 5                                      | 16.7                            | 13.3                               | 〃   |
| 210       | 例示化合物 23: 電子輸送材 K1=80: 20(wt%比)(36)単層 | 515                              | 76200                     | 6                                      | 17.3                            | 13.1                               | 〃   |
| 211       | 例示化合物 23: 例示化合物 26=50: 50(wt%比)(36)単層 | 514                              | 71900                     | 5                                      | 19.3                            | 13.0                               | 〃   |
| 212       | 例示化合物 24: 例示化合物 26=50: 50(wt%比)(36)単層 | 515                              | 90600                     | 5                                      | 19.5                            | 13.4                               | 〃   |

a) 200 cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率

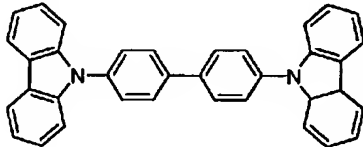
【0135】

【化52】

化合物D



化合物E



【0136】表2中、wt%は質量%を意味する。表2の結果から、2種以上の電子輸送材料を有し、且つ一般式(I)で表される化合物を少なくとも1種含有した本発明の素子では、燐光発光性化合物Dを用いた系で輝度、発光効率、耐久性ともに良好な結果が得られることがわかる。

表3

| 試料<br>No. | 電子輸送材料<br>(膜厚 nm)                     | 発光波長<br>$\lambda_{\max}$<br>(nm) | 最高輝度<br>cd/m <sup>2</sup> | 200cd/m <sup>2</sup><br>発光時の<br>電圧(V) | 外部量<br>子効率<br>(%) <sup>a)</sup> | 経時後外<br>部量子効<br>率(%) <sup>a)</sup> | 備考  |
|-----------|---------------------------------------|----------------------------------|---------------------------|---------------------------------------|---------------------------------|------------------------------------|-----|
| 301       | 電子輸送材 K1(36)単層                        | 520                              | 4800                      | 14                                    | 4.1                             | 1.6                                | 比較例 |
| 302       | バソクブロン(10)/電子輸送材 K1(26)単層             | 516                              | 6800                      | 15                                    | 5.9                             | 1.1                                | 〃   |
| 303       | 例示化合物 23(36)単層                        | 514                              | 8200                      | 13                                    | 7.8                             | 3.3                                | 〃   |
| 304       | 例示化合物 23(18)/電子輸送材 K1(18)積層           | 515                              | 12300                     | 9                                     | 9.3                             | 7.2                                | 本発明 |
| 305       | 例示化合物 23(18)/電子輸送材 K1(18)積層           | 514                              | 14100                     | 8                                     | 10.0                            | 7.8                                | 〃   |
| 306       | 例示化合物 2(18)/例示化合物 26(18)積層            | 515                              | 26000                     | 8                                     | 11.5                            | 9.4                                | 〃   |
| 307       | 例示化合物 23(18)/例示化合物 26(18)積層           | 515                              | 28900                     | 8                                     | 12.3                            | 10.1                               | 〃   |
| 308       | 例示化合物 23: 電子輸送材 K1=50: 50(wt%比)(36)単層 | 514                              | 16300                     | 7                                     | 9.6                             | 7.4                                | 〃   |
| 309       | 例示化合物 23: 電子輸送材 K1=80: 20(wt%比)(36)単層 | 515                              | 16900                     | 8                                     | 10.3                            | 8.0                                | 〃   |
| 310       | 例示化合物 23: 例示化合物 26=50: 50(wt%比)(36)単層 | 514                              | 24400                     | 7                                     | 11.3                            | 9.2                                | 〃   |
| 311       | 例示化合物 24: 例示化合物 26=50: 50(wt%比)(36)単層 | 515                              | 25200                     | 7                                     | 11.5                            | 9.3                                | 〃   |

a) 200 cd/m<sup>2</sup>発光時の外部量子効率

【0139】表3中、wt%は質量%を意味する。表3の結果から、2種以上の電子輸送材料を有し、且つ一般式(I)で表される化合物を少なくとも1種含有した本発明の素子では、発光層を塗布法により製膜した素子に

\*【0137】実施例3. 実施例1と同様にエッチング、洗浄したITOガラス基板の上に、Baytron P (PEDOT-PSS溶液(ポリジオキシエチレン-ポリスチレンスルホン酸ドーブ体)/バイエル社製)をスピコートした後、100℃で1時間加熱乾燥し、ホール注入層(膜厚約50nm)を敷設した。この上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール)(PVK)40mg、実施例2の化合物D 1mgを1,2-ジクロロエタン3mlに溶解した溶液をスピコートした(膜厚約70nm)。次いで表3記載の電子輸送材料を蒸着し(化合物、膜厚は表2に記載)、更にLiFを膜厚約1nmを順に10<sup>-4</sup>~10<sup>-6</sup>Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。この上にバタニングしたマスク(発光面積が5mm×4mmとなるマスク)を設置し、アルミニウムを膜厚約200nm蒸着して素子を作成した。なお、作製した素子は乾燥グローブボックス内で封止した。作製した素子について実施例1と同様な評価を行った。結果を表2に示す。

【0138】

【表3】

においても、輝度、発光効率、耐久性ともに良好な結果が得られることがわかる。

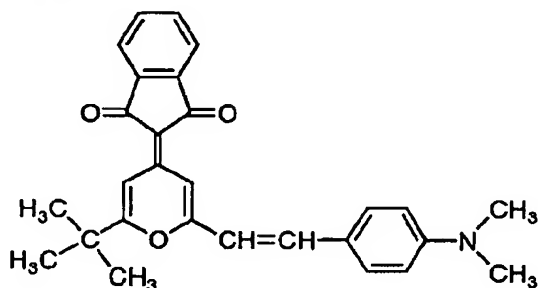
【0140】実施例4. 実施例2における試料No. 2006のLiFの代わりにLiを蒸着し、素子を作製し

た。実施例2と同様な評価を行った結果、本素子の発光波長 $\lambda_{\max}$ は515nm、最高輝度は186000cd/m<sup>2</sup>、1000cd/m<sup>2</sup>発光時の駆動電圧は5V、外部量子効率率は20%、経時後の外部量子効率率は13.9%と優れた性能が得られた。

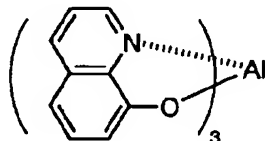
【0141】実施例5. 実施例2における試料No. 206のLiFの代わりに2-ナフタレンカルボンLi塩を蒸着し、素子を作製した。実施例2と同様な評価を行った結果、本素子の発光波長 $\lambda_{\max}$ は515nm、最高輝度は148000cd/m<sup>2</sup>、1000cd/m<sup>2</sup>発光時の駆動電圧は5V、外部量子効率率は19.8%、経時後の外部量子効率率は13.1%と優れた性能が得られた。

【0142】実施例6. 実施例1における試料No. 1\*

化合物F



化合物G



【0144】

【発明の効果】本発明の素子は高い発光輝度、発光効率を示し、保存耐久性に関しては、高温保存した後に発光

\* 21の発光層材料（青色発光材料B+発光層ホスト材料C）の代わりに化合物Fおよび化合物Gの共蒸着層（化合物Fの蒸着速度0.001nm/秒、化合物Gの蒸着速度0.4nm/秒）を膜厚20nm、次いで実施例1の化合物Bと化合物Cの共蒸着層（化合物Bの蒸着速度0.001nm/秒、化合物Cの蒸着速度0.4nm/秒）を膜厚20nmになるように順次付設した。その他の素子作製は実施例1と同様に行い、素子を作製した。本素子のCIE色度座標は(x, y) = (0.32, 0.32)の白色発光を示し、最高輝度10400cd/m<sup>2</sup>、外部量子効率3.0%と、良好な白色発光を示した。

【0143】

【化53】

効率の低下も少なく、耐久性が大幅に改善される。また通常発光効率が低い塗布型素子においても同様な効果が得られる。